(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2006年3月9日(09.03.2006)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2006/025484 A1

(51) 国際特許分額:

C03C 27/12 (2006.01)

B32B 27/30 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2005/015993

(22) 国際出願日:

2005年9月1日(01.09.2005)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 特願2004-255931

2004年9月2日(02.09.2004)

- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 積水化 学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目 4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 丸本忠 (MARU-MOTO, Tadashi) [JP/JP]; 〒5288585 滋賀県甲賀市水 口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).
- (74) 代理人: 安富康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒5320011 大 阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号中央ビ ル Osaka (JP).

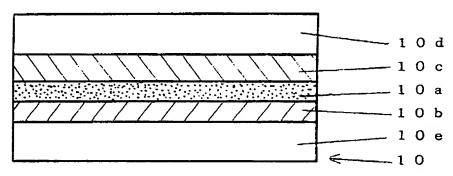
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護 が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可 能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

- (54) Title: INTERMEDIATE FILM FOR GLASS LAMINATE AND GLASS LAMINATE
- (54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



- layers containing an adhesive resin, wherein a heat ray shielding resin layer containing fine particles for shielding a heat ray and a color-correcting resin layer being adjusted to have the color being complementary with the color of the above fine particles for shielding a heat ray are laminated; and a glass laminate. The above intermediate film for a glass laminate is excellent in the heat ray shielding capability and also is excellent in the colorless transparency which allows the glass laminate to exhibit natural colors. (57) Abstract: The purpose of this invention is to provided an intermediate film for a glass laminate having a plurality of laminated
 - (57) 要約: 本発明は、熱線遮蔽性能に優れるとともに、自然な色に見える無色透明性にも優れた合わせガラス用中 間膜及び合わせガラスを提供することを目的とする。 本発明は、接着性樹脂からなる複数の層が積層された合わせ ガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色 された色調補正樹脂層とが積層されている合わせガラス用中間膜である。

明細書

合わせガラス用中間膜及び合わせガラス 技術分野

- [0001] 本発明は、熱線遮蔽性に優れるとともに無色透明性にも優れた合わせガラス用中間 膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。 背景技術
- [0002] 合わせガラスは、外部衝撃を受けた際に物体が貫通しにくく、また物体により破損しても、ガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラスに広く使用されている。この種の合わせガラスとしては、透明ガラス板の間に、接着性樹脂、例えば可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等の可塑化ポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を接着させたものが汎用されている。
- [0003] しかし、上記従来の合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは、安全性には優れているものの熱線遮蔽性が劣る。光線のなかでも、可視光線より長い約780nm以上の波長を持つ赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約10%程度と小さいものの、熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると熱として放出され温度上昇をもたらすことから、一般に熱線と呼ばれている。
- [0004] それゆえ、例えば自動車のフロントガラスやサイドガラスから入射してくる光線のうち、 熱的作用の大きな赤外線(熱線)を遮断できるようにすれば、熱線遮蔽性が高まり、 自動車内部の温度上昇を抑えることができる。近年の傾向として、自動車や建築物 等において窓ガラスの開口部面積が増大しており、合わせガラスの熱線遮蔽性を高 くし、これ等の窓ガラスの開口部に熱線遮蔽機能を付与する必要が増大している。
- [0005] ところで、下記の特許文献1には、熱線遮蔽性能を有する錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の熱線遮蔽微粒子を、可塑化ポリビニルアセタール樹脂等の接着性樹脂中に分散させてなる合わせガラス用中間膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスが開示されている。このような合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、熱線遮蔽性に優れ且つ透明性にも優れており、

自動車や建築物等の窓ガラスとして非常に有用である。

[0006] しかし、このような熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、中間膜中に分散された熱線遮蔽微粒子が、その性質として赤色領域の可視光線も遮断し、またその粒子径に応じて青色領域の可視光を散乱するため、結果として透過光は黄緑みがかった色調を示し、得られる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスがわずかに黄緑みがかった色を呈する。そのため、高度の熱線遮蔽性を得るために熱線遮蔽微粒子の濃度を高くすると、黄緑みの程度が増大する。それゆえ、自然な色に見える無色透明が要求される用途にあっては、熱線遮蔽微粒子の濃度を高くできず、無色透明で高度の熱線遮蔽性を得るには、まだ充分に満足のいくものではなく、この点で未だ改善すべき問題があった。

特許文献1:国際公開第01/25162号パンフレット

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、上記の問題を解決するものであり、その目的とするところは、熱線遮蔽性能に優れるとともに、自然な色に見える無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 上記目的は、本発明によって達成することができる。

すなわち、本発明は、接着性樹脂からなる複数の層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層とが積層されている合わせガラス用中間膜である。ここで、上記接着性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。

- [0009] また、更に、紫外線吸収樹脂層が積層されていることが好ましい。
- [0010] 透明ガラス板の間に、本発明の合わせガラス用中間膜が接着されている合わせガラスもまた、本発明の1つである。
- [0011] 以下本発明を詳述する。

熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層及び紫外線吸収樹脂層を構成する樹脂としては

、従来の合わせガラス用中間膜に用いられている接着性樹脂、例えば、可塑化ポリビニルアセタール樹脂、エチレンー酢酸ビニル系共重合体樹脂、エチレンー(メタ)アクル酸エステル系共重合体樹脂、ポリウレタンエラストマー系樹脂等が挙げられる。エチレンー酢酸ビニル共重合体樹脂は、その構成成分として酢酸ビニル成分を18~35重量%含有するものが好ましい。

これらの接着性樹脂からなる中間膜を用いた合わせガラスは、透明性がよい、耐候性がよい、接着性がよい、耐貫通性がよい、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必要な基本的性能を有している。なかでも、可塑化ポリビニルアセタール樹脂.が性能バランスに優れ好ましい。

- [0012] 本発明に用いるポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、従来より合わせガラス用中間膜用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えば、アセタール化度60~75モル%、平均重合度800~3000のもの等が好適に用いられる。平均重合度が800未満であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に平均重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強度が強くなりすぎて、得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。また、アセタール化度が60モル%未満であると、可塑剤との相溶性が低下して、耐貫通性の確保に必要な量の可塑剤を含有させることが難しくなることがあり、樹脂膜の吸湿性も高くなり、逆にアセタール化度が75モル%を超えると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。なかでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニルブチラール樹脂が好適である。
- [0013] なお、ポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂の平均重合度及びアセタール化度は、例えばJIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。
- [0014] 上記ポリビニルアセタール樹脂を得るには、公知の方法が採用される。例えば、所定のポリビニルアルコールを使用し、これを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0~95℃に保持して所要の酸触媒及びアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させ、次いで反応温度を上げて熟成し反応を完結させ、その

後、中和、水洗及び乾燥を行ってポリビニルアセタール樹脂の粉末を得ることができる。

- [0015] ここで、上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニルを鹸化することにより得られ、鹸化度80~99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。このポリビニルアルコールの平均重合度は200~3000であることが好ましい。平均重合度が200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に300を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。より好ましい平均重合度は500~2000である。なお、ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度及び鹸化度は、例えばJIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。
- [0016] また、上記アルデヒドとしては特に限定されず、一般に炭素数が1~10のアルデヒドが用いられ、例えば、nーブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、nーバレルアルデヒド、nーバレルアルデヒド、nースクチルアルデヒド、nースクチルアルデヒド、nーノニルアルデヒド、nーデシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、nーブチルアルデヒド、nーヘキシルアルデヒド、nーバレルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアルデヒドである。
- [0017] 上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂は、上記のポリビニルアセタール樹脂に可塑剤を含有することにより得られる。上記可塑剤としては特に限定されず、この種の中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤;有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。
- [0018] 上記一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イン酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプチル酸、n-オクチル酸、2-エチルキシル酸、ペラルゴン酸(n-ノニル酸)、デシル酸等の一塩基性有機酸との反

応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコールージカプロン酸エステル、トリエチレングリコールージー2ーエチル酪酸エステル、トリエチレングリコールージーnーオクチル酸エステル、トリエチレングリコールージー2ーエチルへキシル酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

- [0019] 上記多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4~8の直鎖状または分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。
- [0020] 上記有機リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる
- [0021] これらの可塑剤の中でも特に、トリエチレングリコールージー2ーエチルブチレート(3 GH)、トリエチレングリコールージー2ーエチルヘキサノエート(3GO)、テトラエチレングリコールージー2ーエチルヘキサノエート(4GO)、テトラエチレングリコールージー2ーブチルセバケート等が好適に用いられる。
- [0022] これらの可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20~60 重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜や合わせガラ スの衝撃吸収性が不充分となることがあり、逆に60重量部を超えると、可塑剤がブリ ードアウトして、得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性 やガラス板と中間膜との接着性が損なわれたりすることがある。より好ましい可塑剤の 配合量は30~50重量部である。
- [0023] 本発明に用いる熱線遮蔽微粒子としては特に限定されず、例えば、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫(ATO)微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛(AZO)微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛(IZO)微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、アンチモン酸亜鉛、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種が好適である。

これらの熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層は、透過色がすべて淡黄緑色を帯びており、優れた赤外線(熱線)遮蔽機能を有する。

- [0024] 上記熱線遮蔽微粒子の平均粒子径は80nm以下であることが好ましい。平均粒子径が80nmを超えると、熱線遮蔽微粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる合わせガラス用中間膜の透明性が損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば自動車のフロントガラスで要求されるような高度な透明性を満足することができなくなる。より好ましい平均粒子径は10~80nmである。なお、熱線遮蔽微粒子の粒子径及び平均粒子径は、光散乱測定装置(例えば、大塚電子社製「DLS-6000AL」)を使用して、Arレーザーを光源として動的光散乱法により測定することができる。
- [0025] このような熱線遮蔽微粒子は、上記熱線遮蔽樹脂層中に均一に微分散されていることが好ましい。均一に微分散させることにより、熱線遮蔽性は全体にわたって高いものとなり、更に、ガラス板と中間膜との接着力が調節可能となり、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの耐貫通性も優れたものとなる。
- [0026] 上記熱線遮蔽樹脂層においては、上記熱線遮蔽微粒子は、粒子径100nm以上の粒子が1個/μm²以下に分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で本発明の合わせガラス用中間膜を撮影、観察したときに、粒子径100nm以上の上記熱線遮蔽微粒子が観察されないか、または、観察された場合には1μm²の枠の中心に粒子径100nm以上の熱線遮蔽微粒子を置くと、かかる1μm²の枠内に粒子径100nm以上の熱線遮蔽微粒子が他に観察されない状態となるよう分散しているのが好ましい。これにより、合わせガラスにしたときに、低ヘイズで透明性に優れ、全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、透過型電子顕微鏡(例えば、日立製作所社製H-7100FA型透過型電子顕微鏡)を用いて、加速電圧100kVで撮影することにより行うことができる。
- [0027] これらの熱線遮蔽粒子の配合量としては、全接着性樹脂(例えばポリビニルアセタール樹脂)100重量部に対して0.1~3重量部が好ましい。配合量が0.1重量部未満であると、赤外線(熱線)遮蔽効果が充分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの熱線遮蔽性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が3

重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過 性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

- [0028] 一方、上記熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層は、接着性樹脂に上記熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層の有する黄緑色の色調に対して補色となる、即ち青色と赤色の色調の着色剤、又は、紫色の色調の着色剤を分散させることにより得られる。このための着色剤としては、特に限定されず、例えば、青色着色剤としては、フタロシアニン系青色着色剤、インダンスレン系青色着色剤、アンスラキノン系青色着色剤等が挙げられ、赤色着色剤としては、ペリレン系赤色着色剤、アンスラキノン系赤色着色剤等が挙げられ、紫色着色剤としては、ジオキサジン系紫色着色剤、アンスラキノン系紫色着色剤、ジクロロキナクリドン系紫色着色剤等が挙げられる。
- [0029] これらの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.0005~0.05重量部が好ましい。配合量が0.0005重量部未満であると、補色作用が充分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの無色透明性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が0.05重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。
- [0030] ここで、上記熱線遮蔽樹脂層に熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を添加しようとすると、添加した着色剤と熱線遮蔽微粒子との間で酸化還元反応が起こって、熱線遮蔽樹脂層が黄色味に着色してしまい無色透明性が損なわれることが判明した。このため、熱線遮蔽微粒子とこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤とは、同一層中に併用できない。
- [0031] そこで、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調 と補色に調色された色調補正樹脂層と別々に積層すると、意外にも、得られる合わ せガラス用中間膜の色調を、自然な色に見えるように無色透明にすることができるこ とがわかった。この場合、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とは隣接していることが 、無色透明化が効果的に達成できる点で好ましい。
- [0032] また、上記紫外線吸収樹脂層は、接着性樹脂に紫外線吸収剤を含有させることによ

り得られる。紫外線吸収剤としては特に限定されず、例えば、マロン酸エステル系化合物、シュウ酸アニリド系化合物、ベングトリアゾール系化合物、ベングフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベングエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物等の紫外線吸収剤が挙げられる。なかでも、ベングトリアゾール系化合物、例えば、2-(2'ーヒドロキシー5'ーメチルフェニル)ベングトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」)、2-(2'ーヒドロキシー3',5'ージーtーメチルフェニル)ベングトリアグール(チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」)、2-(2'ーヒドロキシー3',5'ージーtーメチルフェニル)ベングトリアグール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン320」)、2-(2'ーヒドロキシー3'ーtーブチルー5'ーメチルフェニル)ー5ークロロベングトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン326」)、2-(2'ーヒドロキシー3',5'ージーアミルフェニル)ベングトリアグール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン328」)等が好ましい。また、ヒンダードアミン系化合物、例えばアデカアーガス社製の商品名「アデカスタブLAー57」等も好ましい。

- [0033] これらの紫外線吸収剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.1~5重量部が好ましい。配合量が0.1重量部未満であると、紫外線吸収遮断作用が充分に発揮されず、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性や耐光性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が5重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。
- [0034] なお、熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層には、接着性樹脂が可塑化ポリビニルアセタール樹脂の場合は、有機酸または無機酸のアルカリ金属塩或いはアルカリ土類金属塩、変成シリコーンオイル等の接着力調整剤;tーブチルヒドロキシトルエン(住友化学社製の商品名「スミライザーBHT」)、テトラキスー〔メチレンー3ー(3',5'ージーtーブチルー4'ーヒドロキシフェニル)プロピオネート〕メタン(チバガイギー社製の商品名「イルガノックス1010」)等の酸化防止剤を添加してもよく、更に光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の従来公知の添加剤が添加されていてもよい。
- [0035] 特に、酸化防止剤は少なくとも熱線遮蔽樹脂層に含有されていることが好ましく、より 好ましくは熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層のいずれの樹脂

層にも酸化防止剤が含有されることが好ましい。上記樹脂層に酸化防止剤を含有させておくことにより、着色を伴う酸化反応を抑えることができる。いずれの樹脂層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの樹脂層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため、酸化反応の抑制効果を維持しやすい。

- [0036] また、紫外線により熱線遮蔽微粒子が着色を伴う反応を引き起こすため、熱線遮蔽 樹脂層への紫外線の透過を抑制するために、上記のような紫外線吸収層を別に設 けておくことが好ましい。
- [0037] 上記紫外線吸収樹脂層には、酸化防止剤を含有させてもよいが、紫外線吸収剤とともに多量の酸化防止剤を含有させると、経時で透明性が悪化することがあるため、紫外線吸収剤や酸化防止剤はそれぞれの樹脂層に少量づつ含有させておくことが好ましい。具体的には、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層に含まれる酸化防止剤の割合は、紫外線吸収樹脂層の濃度を1とした場合に、熱線遮蔽樹脂層が0.7~1、色調補正樹脂層が0.3~1であることが好ましい。なお、紫外線吸収剤としてベングトリアゾール系化合物とヒンダードアミン系化合物とを併用した場合は、酸化反応の抑制が特に必要とされることから、酸化防止剤の添加量を増やしておくことが好ましい。いずれの層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため酸化反応の抑制効果が維持しやすい。
- [0038] 本発明の合わせガラス用中間膜の全体の膜厚は、合わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には通常の透明な合わせガラス用中間膜と同様に、一般に、0.3~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。特に、0.7~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。
- [0039] 特に、この合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して熱線遮蔽樹脂層の厚みが15~25%、色調補正樹脂層の厚みが5~25%、紫外線吸収樹脂層の厚みが50~80%となるように構成するのが好ましい。また、合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して

熱線遮蔽樹脂層の厚みが50~80%、色調補正樹脂層の厚みが20~50%となるよ うに構成するのが好ましい。

[0040] すなわち、色調補正樹脂層が厚くなりすぎると透明性が低下する。したがって、無色 |透明性を確保できる熱線遮蔽樹脂層の厚みの上限も制限される。また、色調補正樹 脂層の厚みが薄すぎると、充分な色調補正が難しくなる。また、熱線遮蔽樹脂層が薄 すぎると、黄緑みの程度は低減されてわずかになるが、熱線遮蔽性能を充分に確保 Back to bio and discogn することが難しくなる。

なお、上記熱線底板影脈系を配置してなる

合わせガラス用中間膜及び上記熱線遮蔽樹脂層

Blues / R&B

る合わせガラス月 Gospel

Publishing

調に対して補色

な組成の透明

The Malaco Story

Abo[0042]。上記熱線遮蔽植 Products & Ser無骸微粒子、可

Licensing Requests

Malaco News

Subtotal:

蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色

y . 3. Cheatin' Sove

例えばずりばを化るなるancと樹脂、熱線

する各種の添加剤をor押出機、プラスト

ダーヴ-GR 磐 料用 five 健嫌し、これを

Customer Serv提出し法、カレ

Contact Us

VM a Bayes Man

セタール樹脂と熱線遮蔽微棉子分散瓦塑剤は名き キシングロール等で混練し、シート状に製膜することにより熱線遮蔽樹脂層を得ること ができる。

- [0043] また、上記色調補正樹脂層は、上記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂 、上記熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤、可塑剤及び必要に応じて 添加する各種の添加剤を、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、 カレンダーロール等を用いて混練し、これを押出し法、カレンダー法、プレス法等の 通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。
- [0044] 更に、上記紫外線吸収樹脂層は、上記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹 脂、紫外線吸収剤、可塑剤及び必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プ ラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、こ

11. Keep It A Secret - Bobby Bland

12. All In The Open - Artie Blues Boy White

れを押出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する 方法により得ることができる。

[0045] 本発明の合わせる記述用出現場 collection account ite will a National Station and incomplete in the Schrick Control of th

Artist 🔀

吸収樹脂層の製膜用配合物とを、多層押出し法により一体に製膜する方法により製 search Q 造することができる。また、別の方法として、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層、更 に必要に応じて紫外線吸収樹脂層とを、二枚のガラス板の間に重ね合わせ、これを加熱加圧することにより一体化して、合わせガラスの製造と同時に製膜する方法により製造することができる。

[0046] この場合、熱線遮蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色 剤を含有しない通常の透明樹脂層を併用してもよい。この通常の透明樹脂層や上記

紫外線吸収樹脂層を併用する際には、得られる合わせガラス用中間膜の色調の無 HOME | ABOUT MALACO | THE MALACO STORY | CUSTOMER SERVICE | CONTACT US | MALACO NEWS | PUBLIS PRODUCTS & SEA 短頭化を効果的に塑成するために、熱線遮蔽樹脂層と色調補短糖脂層と斑隣接® CONDITIC PRIVACY POLICE

© 2004, Malaco Relorg 于何尔特曾多为60分钟 到3986-9287 Design and development by D2 Interactive. Online catalog powered by Shopping Kert

- [0047] 本発明の合わせガラスは、通常の合わせガラスの製法と同様な方法により製造することができる。例えば、少なくとも二枚の透明ガラス板の間に、上述の合わせガラス用中間膜を挟み、これを押圧ロールに通して扱くか或いはゴムバッグに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら約70~110℃で予備接着して積層体とし、次いでこの脱気された積層体をオートクレーブに入れるか或いはプレスを行い、約120~150℃で、約0.98~1.47MPaの圧力で本接着を行うことにより製造される。
- [0048] なお、透明ガラス板としては特に限定されず、一般に使用されている透明ガラス板を使用することができる。このような透明ガラス板としては、例えば、フロート板ガラス、熱 線吸収板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス等の各 種無機ガラス板:ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス板が 挙げられる。これらのガラス板は、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用され

てもよい。なかでも、熱線吸収板ガラスを用いることが好ましい。なお、これ等のガラス 板の厚みは、用途によって適宜選択されればよく、特に限定されるものではない。 発明の効果

- [0049] 本発明によれば、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層により、合わせガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線(熱線)が吸収ないしは反射されることにより遮断され、車内或いは室内の温度上昇が抑えられ、人体や物体の熱的障害を防止することができる。しかも、遮熱微粒子の存在により熱線遮蔽樹脂層は透過色が黄緑みがかった色調を呈するが、上記遮熱微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層により、熱線遮蔽微粒子に由来する熱線遮蔽樹脂層の黄緑みがかった色調が無彩色化され、かつ熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が別の層に含まれているので、熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が層内で接触することがなく、両者の反応による着色を生じない。その結果として中間膜及び合わせガラスが無色透明の自然な色に見える状態が持続する。更に、紫外線吸収樹脂層を有するものは、紫外線による熱線遮蔽樹脂層の変色が防止される上、紫外線カット性能が付与され、内装や備品の褪色、変色を防止することができる。
- [0050] したがって、本発明の合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの用途は、特に限定されないが、例えば、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス ; 航空機や電車等の乗り物のガラス部位、建築物の窓ガラス等のうち、特に熱線遮蔽と無色透明性が要求される場合に好適に使用される。

発明を実施するための最良の形態

[0051] 以下に実施例を挙げて本発明の態様を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施 例にのみ限定されるものではない。

[0052] (実施例1)

(1)ポリビニルブチラール樹脂の合成

純水2890重量部に、平均重合度1700、鹸化度99. 2モル%のポリビニルアルコール275重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を15℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201重量部とnーブチルアルデヒド157重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を60℃で3時間保持して反応を完了させ、

過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は68.5モル%であった。

[0053] (2)熱線遮蔽微粒子分散可塑剤の調製

トリエチレングリコールージー2ーエチルブチレート(3GO)40重量部と、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子1重量部を仕込み、これに分散剤として長鎖アルキルリン酸エステル0.1重量部を添加して、水平型のマイクロビーズミルにて上記可塑剤中にITO微粒子を分散させて、熱線遮蔽微粒子分散可塑剤を調製した。この熱線遮蔽微粒子分散可塑剤中のITO微粒子の平均粒径は35nmであった。

[0054] (3)熱線遮蔽樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に、上記(2)で得られた熱線遮蔽微粒子分散可塑剤40重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの熱線遮蔽樹脂層となる中間膜を作製した。この膜中のITO 微粒子の平均粒径は56nmであり、粒径が100nm以上の粒子は観察されなかった

[0055] (4)色調補正樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に、上記ITO微粒子の黄緑みがかった色と補色となる色調に調整した、青色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-5A1083N」)0.15重量部と赤色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-100N」)0.04重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2ーエチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.38mmの色調補正樹脂層となる中間膜を作製した。

[0056] (5)紫外線吸収樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に、ベンゾトリアゾール系

紫外線吸収剤(チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」)とヒンダードアミン系紫外線吸収剤(アデカアーガス社製の商品名「アデカスタブLA-57」)の混合物(重量比7:3)2重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.38mmの紫外線吸収樹脂層となる中間膜を作製した。

[0057] (6) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

上記色調補正樹脂層となる中間膜、熱線遮蔽樹脂層となる中間膜、紫外線吸収樹脂層となる中間膜の順に重ね、プレスによりいったん三層構成の合わせガラス用中間膜を製造した。この三層構成の合わせガラス用中間膜を、二枚の無色透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオーブンに移し、更に90℃で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスを、エアー式オートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図1に示す。図1において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10cは紫外線吸収樹脂層、10d及び10eは透明なフロートガラス板である。

[0058] (実施例2)

紫外線吸収用中間膜を用いなかったこと以外は、実施例1と同様の方法により二層構成の合わせガラス用中間膜を製造し、この二層構成の合わせガラス用中間膜を用いて、実施例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図2に示す。図2において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10d及び10eは透明なフロートガラス板である。

[0059] (比較例1)

熱線遮蔽樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-5A1083N」)0.075重量部と赤色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-100N」)0.02重量部を加え、色調補正樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー0.15重量部と赤色の顔料トナー0.04重量部を加えなかった以外は実施例1と同様にし

て合わせガラス用中間膜を製造し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて、実施 例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。

[0060] (評価)

上記実施例1、2及び比較例1で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、下記の方法により可視光透過率及び日射透過率の測定を行い、熱線遮蔽性能及び無色透明性の評価を行った。なお、図1の合わせガラス10では、紫外線吸収樹脂層10dを外側(屋外)と想定し、図2の合わせガラス10では、熱線遮蔽樹脂層10dを外側(屋外)と想定して測定を行った。その結果を表1に示す。

[0061] (1)可視光透過率及び日射透過率の測定

直記分光光度計(島津製作所社製「UV3100」)を使用して、得られた合わせガラスの300~2500nmの透過率を測定し、JIS Z 8722及びJIS R 3106に従って、3 80~780nmの可視光透過率及び300~2500nmの日射透過率を求めた。

[0062] (2)合わせガラスの外観の評価

合わせガラス全体の色調について、目視により評価を行った。

[0063] [表1]

	実施例1	実施例2	比較例1
可視構成透過率(%)	84	84	84
日射透過率(%)	54	54	54
合わせガラスの外観	無色透明	無色透明	黄味みあり

産業上の利用可能性

[0064] 本発明によれば、熱線遮蔽性に優れるとともに無色透明性にも優れた合わせガラス 用中間膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することがで きる。

図面の簡単な説明

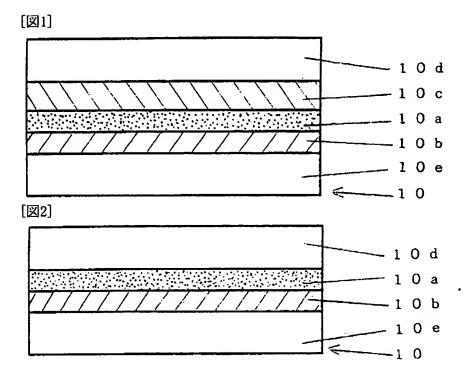
- [0065] [図1]本発明の合わせガラスの一実施態様を示す断面図である。 [図2]本発明の合わせガラスの他の実施態様を示す断面図である。 符号の説明
- [0066] 10 合わせガラス

- 10a 熱線遮蔽樹脂層
- 10b 色調補正樹脂層
- 10c 紫外線吸収樹脂層
- 10d 透明なフロートガラス板
- 10e 透明なフロートガラス板

請求の範囲

- [1] 接着性樹脂からなる複数の層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮 蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色 された色調補正樹脂層とが積層されていることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
- [2] 接着性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。
- [3] 更に、紫外線吸収樹脂層が積層されていることを特徴とする請求項1又は2記載の合 わせガラス用中間膜。
- [4] 透明ガラス板の間に、請求項1、2又は3記載の合わせガラス用中間膜が接着されていることを特徴とする合わせガラス。

WO 2006/025484 PCT/JP2005/015993



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/015993

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER				
	(2006.01), B32B27/30 (2006.01)			
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
B. FIELDS SE	ARCHED			
	nentation searched (classification system followed by cla (2006.01), <i>B32B27/30</i> (2006.01)	assification symbols)		
Documentation s	earched other than minimum documentation to the exter	nt that such documents are included in the	fields searched	
		tsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005	
		roku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005	
	•			
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)				
C. DOCUMEN	TS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where app	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
Y		hemical Co.,	1-4	
	Ltd.),			
	12 April, 2001 (12.04.01),			
	Full text			
:	& US 6673456 B1			
	full text			
	& EP 1227070 A1			
Y	JP 2001-316504 A (Tomoegawa)	Paper Co., Ltd.),	1-4	
_	16 November, 2001 (16.11.01),			
	Claims; Par. No. [0014]			
	& US 2002/0018163 A1			
	Claims; Par. No. [0053]	·		
			•	
× Further do	cuments are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.		
Special cate;	gories of cited documents:	"T" later document published after the inte	mational filing date or priority	
			ation but cited to understand avention	
"E" earlier applie filing date	cation or patent but published on or after the international	"X" document of particular relevance; the considered novel or cannot be considered.	dered to involve an inventive	
	thich may throw doubts on priority claim(s) or which is ablish the publication date of another citation or other	step when the document is taken alone		
	on (as specified)	"Y" document of particular relevance; the considered to involve an inventive		
	ferring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	combined with one or more other such	documents, such combination	
	ublished prior to the international filing date but later than	being obvious to a person skilled in the "&" document member of the same patent f		
the priority date claimed "&" document member of the same patent family				
Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report				
02 Nove	ember, 2005 (02.11.05)	15 November, 2005	(15.11.05)	
Name and mailin	g address of the ISA/	Authorized officer		
	se Patent Office			
		T. 1 N		
Facsimile No.		Telephone No.		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2005/015993

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 8-52840 A (PPG INDUSTRIES, INC.), 27 February, 1996 (27.02.96), Claims; Par. No. [0020] & US 5792559 A column 5, line 36 to column 6, line 11 & EP 0691199 A2	1-4

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int.Cl.⁷ **CO3C27/12** (2006.01), **B32B27/30** (2006.01)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl.7 C03C27/12 (2006.01), B32B27/30 (2006.01),

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2005年

日本国実用新案登録公報

1996-2005年

日本国登録実用新案公報

1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

<u> 引用文献の</u> カテゴリー*	らと認められる文献 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO 2001/025162 A1 (積水化学工業株式会社) 2001.04.12, 全文 & US 6673456 B1,全文 & EP 1227070 A1	1-4
Υ	JP 2001-316504 A (株式会社巴川製紙所) 2001.11.16, 特許請求の範囲,【0014】 & US 2002/0018163 A1,特許請求の範囲,【0053】	1-4
	,	

▽ C欄の続きにも文献が列挙されている。

「 パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用す る文献(理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 02.11.2005 国際調査報告の発送日 15.11.2005 コラス 1

C (続き). 引用文献の カテゴリー*	関連すると認められる文献 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Υ	JP 8-52840 A (ピーピージー インダストリーズ インコーポレーテツド) 1996.02.27, 特許請求の範囲,【0020】 & US 5792559 A, 第5欄第36行ー第6欄11行 & EP 0691199 A2	1-4
	· · ·	
	·	
	·	